



Docket No.: 21398-00034-US

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re Patent Application of:
Nobuo Nakano et al.

Application No.: 10/658,754

Confirmation No.: 3409

Filed: September 10, 2003

Art Unit: N/A

For: FORMALDEHYDE DETECTING MATERIAL Examiner: Not Yet Assigned

CLAIM FOR PRIORITY AND SUBMISSION OF DOCUMENTS

Commissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, VA 22313-1450

Dear Sir:

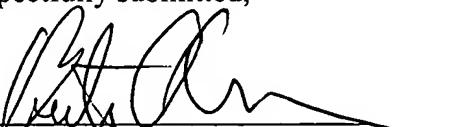
Applicant hereby claims priority under 35 U.S.C. 119 based on the following prior foreign application filed in the following foreign country on the date indicated:

Country	Application No.	Date
Japan	2002-263713	September 10, 2002

In support of this claim, a certified copy of the said original foreign application is attached.

Dated: 5-17-04

Respectfully submitted,

By 
Burton A. Amernick
Registration No.: 24,852
CONNOLLY BOVE LODGE & HUTZ LLP
1990 M Street, N.W., Suite 800
Washington, DC 20036-3425
(202) 331-7111
(202) 293-6229 (Fax)
Attorney for Applicant



JAPAN PATENT OFFICE

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this office.

Date of Application : September 10, 2002

Application Number: Patent Application
No.2002-263713
[ST.10/C] JP2002-263713

Applicant(s): RIKEN KEIKI CO.,LTD.

10th September, 2003

Commissioner,
Japan Patent Office Yasuo IMAI

Issuance No.2003-3074384

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2002年 9月10日
Date of Application:

出願番号 特願2002-263713
Application Number:

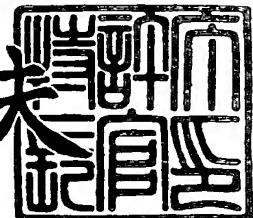
[ST. 10/C] : [JP2002-263713]

出願人 理研計器株式会社
Applicant(s):

2003年 9月10日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井康夫



【書類名】 特許願
【整理番号】 RK-264
【提出日】 平成14年 9月10日
【あて先】 特許庁長官 太田 信一郎 殿
【国際特許分類】 G01N 21/78
【発明者】
【住所又は居所】 東京都板橋区小豆沢2丁目7番6号 理研計器株式会社
内
【氏名】 中野 信夫
【発明者】
【住所又は居所】 東京都板橋区小豆沢2丁目7番6号 理研計器株式会社
内
【氏名】 川辺 哲也
【発明者】
【住所又は居所】 東京都板橋区小豆沢2丁目7番6号 理研計器株式会社
内
【氏名】 寺内 靖裕
【発明者】
【住所又は居所】 神奈川県横浜市港北区日吉3丁目14番1号
【氏名】 鈴木 孝治
【特許出願人】
【識別番号】 000250421
【氏名又は名称】 理研計器株式会社
【代理人】
【識別番号】 100082566
【弁理士】
【氏名又は名称】 西川 慶治

【選任した代理人】

【識別番号】 100087974

【弁理士】

【氏名又は名称】 木村 勝彦

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 015484

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 ホルムアルデヒド検知材

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 4-amino-4-phenyl-3-ene-2-oneと緩衝液とを含む発色液を少なくともガス反応領域にシリカゲルを含有する板状の基材に含侵させ、溶媒を揮散させたホルムアルデヒド検知材。

【請求項 2】 前記基材が、シリカゲル粒子を圧縮して板状に成形して構成されている請求項 1 に記載のホルムアルデヒド検知材。

【請求項 3】 前記基材が、ベース材の表面にシリカゲル粒子の層を形成して構成されている請求項 1 に記載のホルムアルデヒド検知材。

【請求項 4】 前記基材が、繊維とシリカゲル粒子とを混合して板状に漉いて構成されている請求項 1 に記載のホルムアルデヒド検知材。

【請求項 5】 前記発色液が4-amino-4-phenyl-3-ene-2-oneを0.5wt%以上含む請求項 1 に記載のホルムアルデヒド検知材。

【請求項 6】 前記緩衝液がりん酸緩衝液である請求項 1 に記載のホルムアルデヒド検知材。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】

本発明は、環境中に存在するホルムアルデヒドを呈色反応で検出する検知材に関する。

【0002】

【従来の技術】

最近、環境健康への高まりから、ホルムアルデヒドによる室内環境汚染が問題になっている。ホルムアルデヒドは新築住宅の建材や家具に含まれており、化学物質過敏症の人々に「シックハウス症候群」と呼ばれる様々な症状を引き起こす原因の一つと見られている。

【0003】

このような問題を解消するために、これら各方法に使用する試薬をろ紙等の多

孔質担体に含浸させて、試薬の取り扱いを無くすることも考えられるが、このようにして構成された試験紙は、検出感度が低かったり、またバックグランド色が大きくて光学濃度計等により反応色を測定しようとすると、ダイナミックレンジが低くなつて検出範囲が狭い等の問題があり、さらにはホルムアルデヒド以外のガスにより変色を受けやすい等の多くの問題があり、実用的な目的では使用することができない等の問題がある。

【0004】

このような問題を解消するために、特許文献1に見られるように、ヒドロキシリアミンの酸性塩と、酸性領域に変色域を有する水素イオン濃度指示薬とを多孔質担体に展開して構成したホルムアルデヒド検知紙が提案されている。

これによれば、相対湿度が80パーセント以上という特別な環境下においては、ホルムアルデヒド消毒後に環境中に残留する数 ppm程度の極めて濃度の低いホルムアルデヒドを検出することが可能であるものの、高湿度下に限られるため、測定可能範囲が限定されてしまうという不都合がある。

この問題を解消するため、特許文献2に見られるように、硫酸ヒドロキシリアミン、及び水素イオン濃度指示薬としてメチルイエロ、メチルオレンジ、ベンジルオレンジ、トロペオリンの中から選択された少なくとも1つとを多孔質担体に展開し、テープ上で自然に遊離している程度の硫酸に対する変色の度合を抑えて、保存性を高めたものなどが提案されている。

【特許文献1】特開平07-55792号公報

【特許文献2】特開平07-229889号公報

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、シックハウス症候群の原因となる壁紙用接着剤から環境中に放散される程度の濃度のホルムアルデヒドを検出するには、長時間を要するという問題を抱えている。

本発明はこのような問題に鑑みてなされたものであつて、その目的とするところはシックハウス症候群の原因となる濃度のホルムアルデヒドを短時間で検出できる感度の高い検知材を提供することである。

【0006】

【課題を解決するための手段】

このような問題を解消するために本発明の検知材は、4-amino-4-phenyl-3-ene-2-oneと緩衝液とを含む発色液を少なくともガス反応領域にシリカゲルを含有する基材に含侵させ、溶媒を揮散させて構成されている。

これによれば、4-amino-4-phenyl-3-ene-2-oneとホルムアルデヒドとの反応により生成するルチジン体の特異的な吸収波長の吸光度を検出することにより、高い感度でホルムアルデヒドを検出することができる。

【0007】

【実施例】

そこで以下に本発明の詳細を実施例に基づいて説明する。

4-amino-4-phenyl-3-ene-2-oneとリン酸緩衝液(pH2.5)とを揮散容易な溶媒、例えばメタノールに溶解させて調製した発色液を、少なくとも表面にシリカゲルを含有する板状の基材に含侵させ、メタノールなどの液を揮散させると本発明の検知材が完成する。

【0008】

基材は、シリカゲル粒子を圧縮して板状に成形したものや、ガラスなどのベース材の表面にシリカゲル粒子の層を形成したもの、さらにはセルロース等の繊維とシリカゲル粒子とを混合して板状に漉いたものなどを使用することができる。

【0009】

このような検知材1は、例えば例えば特開平07-229889号公報に開示されているような図5(イ)に示した一方の面に開口1aを備えた凹部に載置してユニット2に構成すると、図5(ロ)に示した携帯用検出装置にセットして簡便にホルムアルデヒドを検出することができる。

【0010】

この検出装置は、ガス吸引手段3と、測定ヘッド4と、測定ヘッドの光学濃度の変化を検出する信号処理手段とを、測定ヘッドの一部を窓5から露出させるようにケース6に収容して構成され、ガス吸引手段3により吸引したガスをユニット2にあてるように構成されている。なお、図中符号8は、蓋体を、また符号9

はガス吸引口を示す。

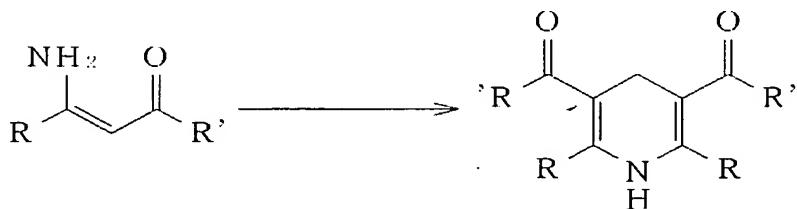
【0011】

このように構成された検知材は、図1の曲線Aに示したように、350 nmをピークとし、400 nmで吸収が無くなる吸光特性を有する。

【0012】

一方、上記検知材を、例えば特開平07-229889号公報に開示されている測定装置にセットしてホルムアルデヒドを含む雰囲気に晒すと、ホルムアルデヒドがシリカゲル粒子の触媒作用を受けて4-amino-4-phenyl-3-ene-2-oneと反応して、

【式1】



なる反応により検知材の表面にホルムアルデヒドの濃度に応じて1-(5-acetyl-2,4-diphenyl-3H,6H-3-azinyl)ethan-1-oneなるルチジン体が生成する。

【0013】

このルチジン体は、図1の曲線Bに示したように4-amino-4-phenyl-3-ene-2-oneが吸収特性を示さない波長400 nmより長波長にも吸収特性を有するため、この波長、例えば波長430 nmの吸光度を、例えば青色発光ダイオード6からの光を照射することにより、受光手段7により特異的に検出することができる。

【0014】

4-amino-4-phenyl-3-ene-2-oneを1Wt%、リン酸緩衝液を20V/V%をずつメタノールに溶解させて発色液を調整して、上記手法により検知材を製造し、それぞれ暴露時間(サンプリング時間)を5分(符号A)、10分(符号B)、15分(符号C)に設定し、ホルムアルデヒドの濃度を換えて吸光度を測定したところ、図2に示したような結果を得た。

このことから、0.05 ppmから0.7 ppm程度のホルムアルデヒドを確実に検出できることが判明した。

【0015】

つぎに、リン酸緩衝液の濃度を一定（20V/V%）にして4-amino-4-phenyl-3-ene-2-oneの濃度を変えた検知材を作成し、ホルムアルデヒドを含有しない空気（符号A）、及びホルムアルデヒドを %含む空気に5分（符号B）、10分（符号C）、15分（符号D）に晒したところ、図3に示すような結果を得た。

このことから、4-amino-4-phenyl-3-ene-2-oneを0.5wt%含む発色試薬が、プランク値が最も小さく、相対感度が高くなることが判明した。

【0016】

さらに、4-amino-4-phenyl-3-ene-2-oneを一定値（1Wt%）とし、リン酸緩衝液の濃度を変えた発色液を調整し、前述の手法で検知材を製作し、ホルムアルデヒドに対する感度を調査したところ、図4に示すような結果を得た。

このことから、感度は、リン酸緩衝液の濃度に比例することが確認されたが、乾燥などの点を考慮すると、リン酸緩衝液の濃度は10V/V%程度に抑えるのが望ましいことが判明した。

【図面の簡単な説明】

【図1】 発色試薬自体と、発色試薬とホルムアルデヒドとの反応体との吸光スペクトルを示す線図である。

【図2】 本発明の検知材のホルムアルデヒドに対する吸光度の変化を、サンプリング時間をパラメータとして示す線図である。

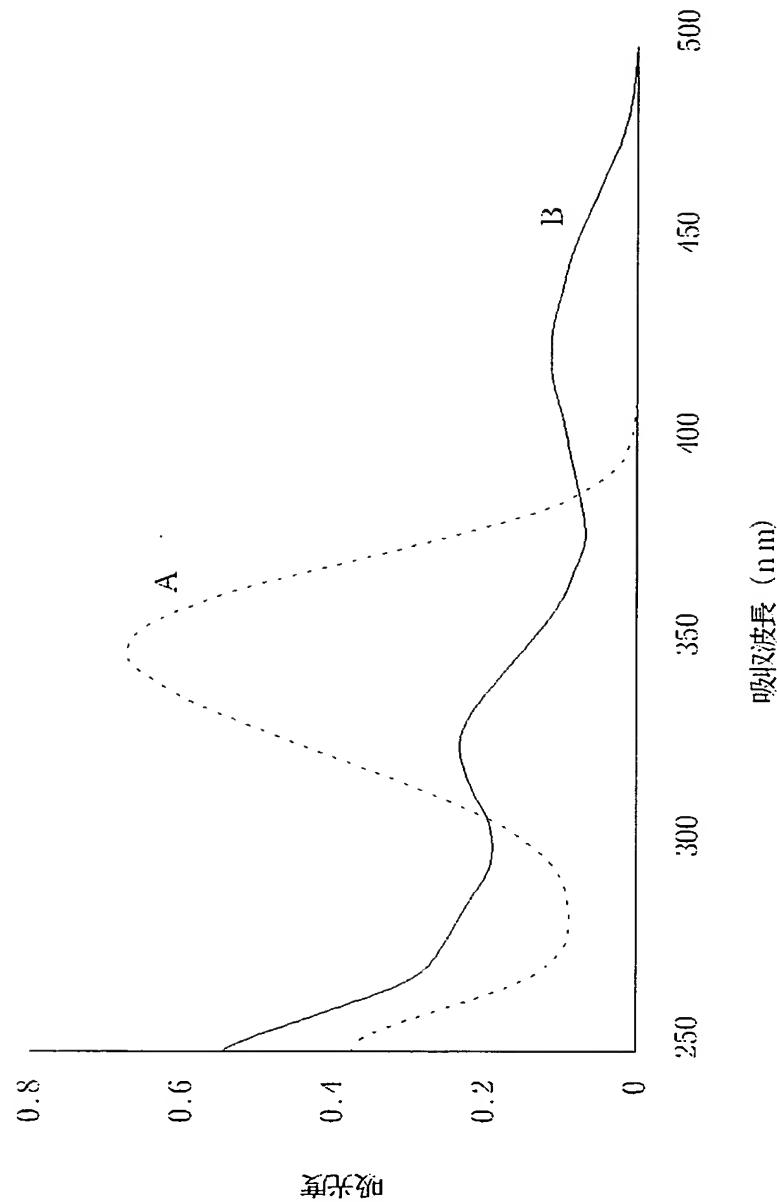
【図3】 本発明の検知材の4-amino-4-phenyl-3-ene-2-oneに対する吸光度の変化を、サンプリング時間をパラメータとして示す線図である。

【図4】 本発明の検知材のリン酸緩衝液の濃度に対する吸光度の変化を示す線図である。

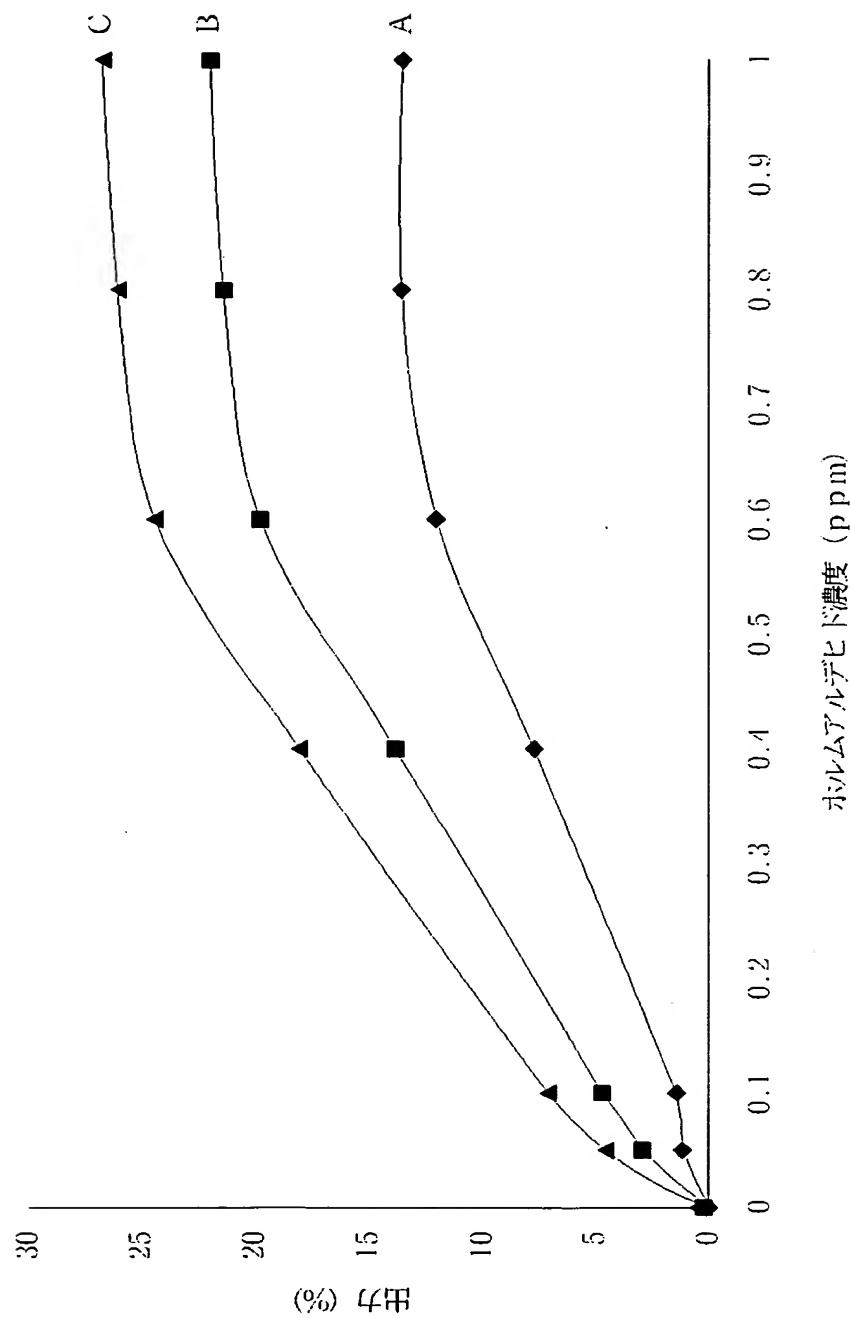
【図5】 図(イ)、(ロ)は、それぞれ本発明の検知材の一形態と測定装置との実施例を示す図である。

【書類名】 図面

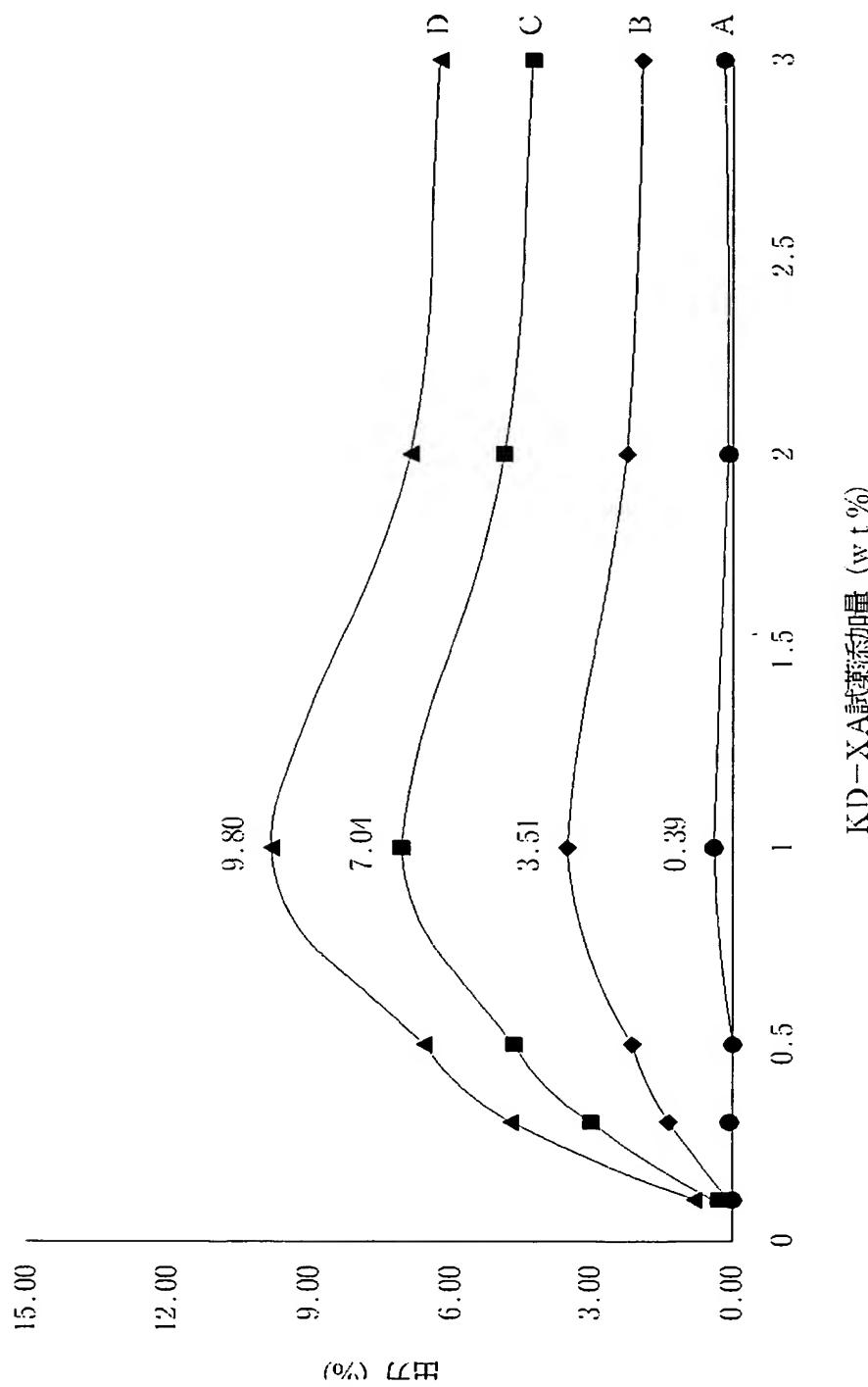
【図 1】



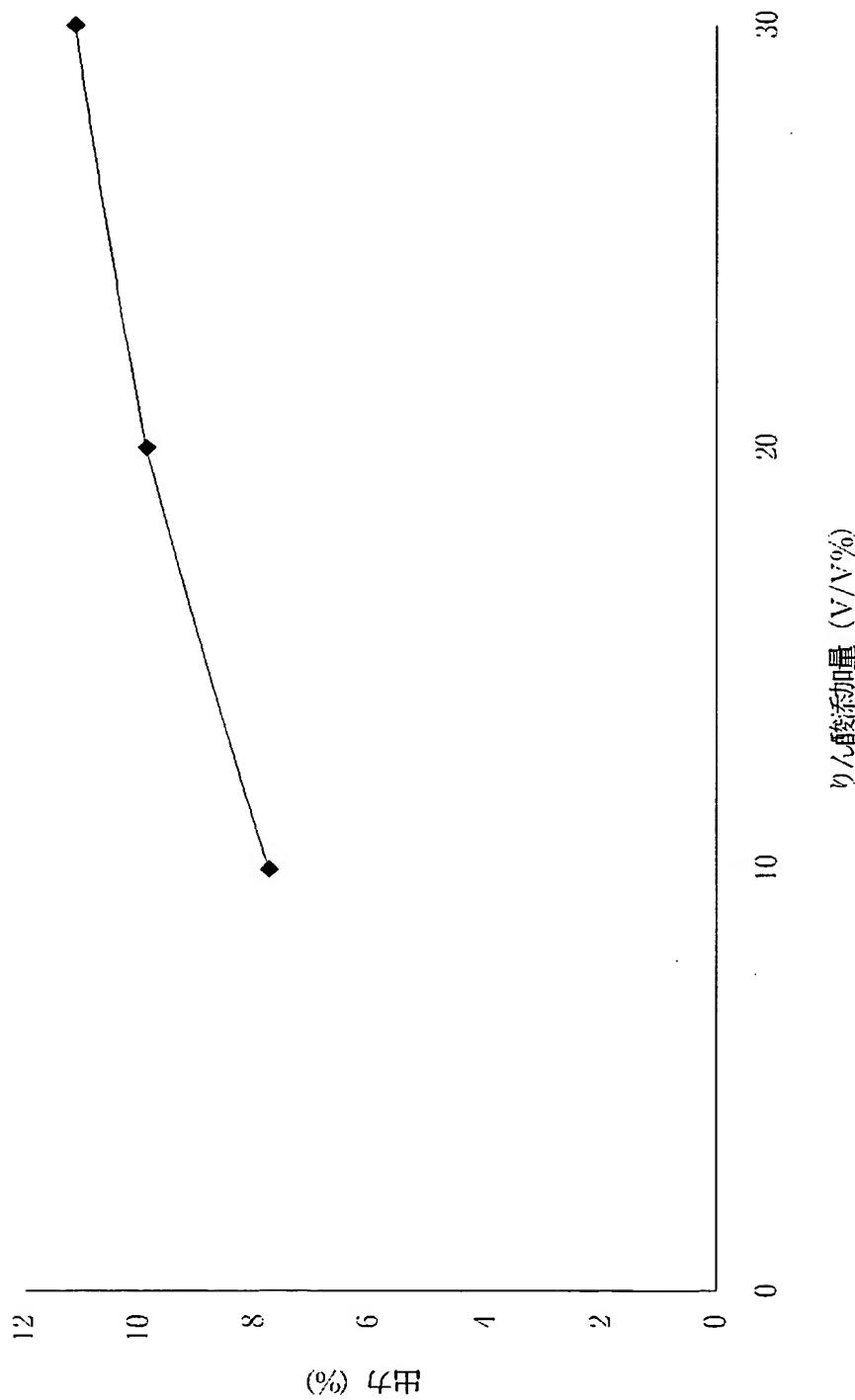
【図2】



【図3】

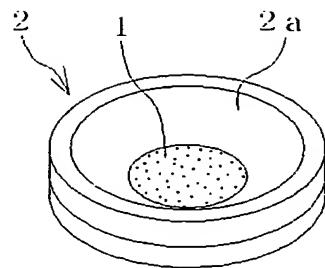


【図4】

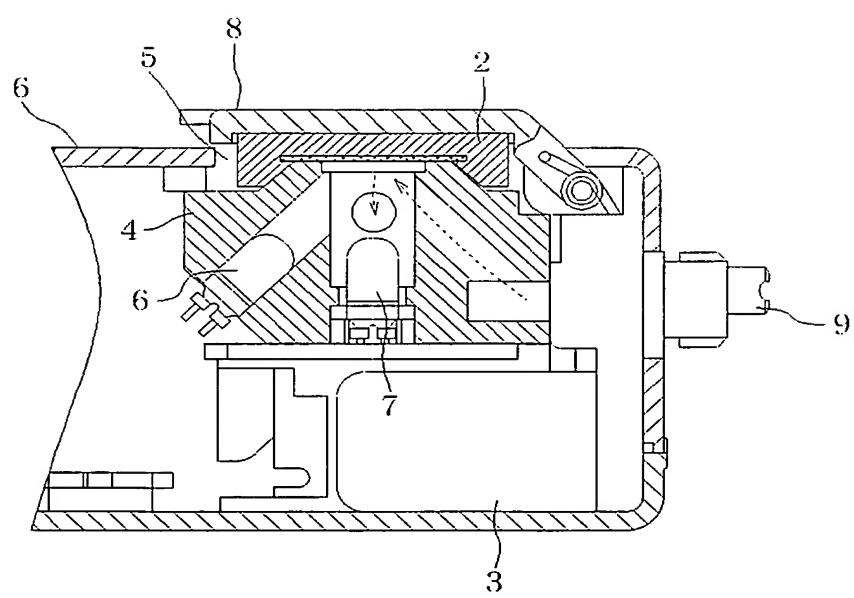


【図5】

(イ)



(ロ)



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 大気に含まれる低い濃度のホルムアルデヒドを短時間で検出すること。

【解決手段】 4-amino-4-phenyl-3-ene-2-oneと緩衝液とを含む発色液を少なくともシリカゲルを含有する基材に含侵させ、溶媒を揮散させて構成されている。

【選択図】 なし

特願 2002-263713

出願人履歴情報

識別番号 [000250421]

1. 変更年月日 1990年 8月 8日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都板橋区小豆沢2丁目7番6号

氏 名 理研計器株式会社